

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2002-308887

(P2002-308887A)

(43)公開日 平成14年10月23日(2002.10.23)

(51)Int.Cl.⁷

C 07 F 7/18

// C 08 K 5/548

識別記号

F I

テマコード(参考)

C 07 F 7/18

Q 4 H 0 4 9

U 4 J 0 0 2

C 08 K 5/548

審査請求 未請求 請求項の数4 O.L (全8頁)

(21)出願番号

特願2001-107982(P2001-107982)

(22)出願日

平成13年4月6日(2001.4.6)

(71)出願人 000002060

信越化学工業株式会社

東京都千代田区大手町二丁目6番1号

(72)発明者 柳澤 秀好

群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10

信越化学工業株式会社シリコーン電子材料
技術研究所内

(74)代理人 100079304

弁理士 小島 隆司 (外1名)

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 有機珪素化合物及びその製造方法

(57)【要約】

$(R^1O)_{(3-p)}(R^2)_pSi-R^3-S_m-R^4-A \dots (1)$

(式中、R¹及びR²はそれぞれ炭素数1～4の1価炭化水素基、R³及びR⁴はそれぞれ炭素数1～10の2価炭化水素基、Aは水素原子又は式-S_m-R³-Si(OR¹)_(3-p)(R²)_p、mは2～10、pは0、1又は2を示す)で表わされる有機珪素化合物。

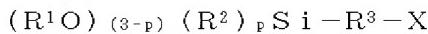
【解決手段】 下記一般式(1)

【効果】 本発明の有機珪素化合物は、無機有機複合材料用配合剤又はフィラーの表面処理剤として有用であり、また本発明の製造方法によれば、かかる有機珪素化合物を確実に製造し得る。

【特許請求の範囲】



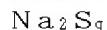
(式中、R¹及びR²はそれぞれ炭素数1～4の1価炭化水素基、R³及びR⁴はそれぞれ炭素数1～10の2価炭化水素基、Aは水素原子又は式-S_m-R³-Si(O_p)



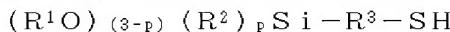
(式中、R¹及びR²はそれぞれ炭素数1～4の1価炭化水素基、R³は炭素数1～10の2価炭化水素基、Xはハロゲン原子、pは0、1又は2を示す)で表されるハ★



(式中、R⁴は炭素数1～10の2価炭化水素基、Xはハロゲン原子、Yは水素原子又はハロゲン原子を示す)☆



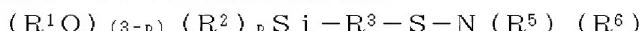
(式中、qは1～4を示す)で表される無水硫化ソーダ又は無水多硫化ソーダ及び場合により硫黄と反応させることを特徴とする請求項1記載の有機珪素化合物の製造◆



(式中、R¹及びR²はそれぞれ炭素数1～4の1価炭化水素基、R³は炭素数1～10の2価炭化水素基、pは*



(式中、R⁴は炭素数1～10の2価炭化水素基、R⁵、R⁶はそれ各自に同一でも異なっていても良く、水素原子又は炭素数1～6の1価炭化水素基を示す(但し、R⁵、R⁶は同時に水素原子ではない)。又は、R⁵、R⁶は互いに結合して窒素原子、酸素原子又は硫黄原子を含んでよい炭素数4～10の2価炭化水素基を形※



(式中、R¹及びR²は炭素数1～4の1価炭化水素基、R³は炭素数1～10の2価炭化水素基、R⁵、R⁶はそれ各自に同一でも異なっていても良く、水素原子又は炭素数1～6の1価炭化水素基を示す(但し、R⁵、R⁶は同時に水素原子ではない)。又は、R⁵、R⁶は互★



(式中、R⁴は炭素数1～10の2価炭化水素基、Zは水素原子又はSHを示す)で表されるメルカプト基含有化合物とを反応させることを特徴とする請求項1記載の有機珪素化合物の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、分子内片末端にオルガノオキシシリル基と分子のもう一方の片末端に1価炭化水素基を持ち、更にポリスルフィド基を含有する新規な有機珪素化合物及び分子内両末端にオルガノオキシシリル基と分子中央部に両側がポリスルフィド基で結合された2価炭化水素基を含有する新規な有機珪素化合物並びにその製造方法に関するものである。

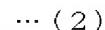
【0002】

【従来の技術】従来から、アルコキシリル基とポリスルフィド基を分子内に含む化合物は知られている。これらの化合物は、シリカ、水酸化アルミ、タルク等の無機☆50

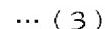
【請求項1】 下記一般式(1)



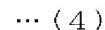
【請求項2】 下記一般式(2)



★ロゲノアルキル基含有有機珪素化合物及び下記一般式(3)

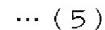


☆で表されるハロゲン基含有化合物を、下記一般式(4)

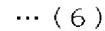


◆方法。

【請求項3】 下記一般式(5)

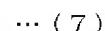


* 0, 1又は2を示す)で表されるメルカプトアルキル基含有有機珪素化合物と、下記一般式(6)

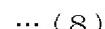


※成する。Bは水素原子又は式-S-N(R⁵)(R⁶)を示す)で表されるスルフェンアミド基含有化合物とを反応させることを特徴とする請求項1記載の有機珪素化合物の製造方法。

【請求項4】 下記一般式(7)



★いに結合して窒素原子、酸素原子又は硫黄原子を含んでよい炭素数4～10の2価炭化水素基を形成する。pは0, 1又は2を示す。)で表されるスルフェンアミド基含有有機珪素化合物と、下記一般式(8)



☆材料と熱硬化性樹脂、熱可塑性樹脂、ゴム等の有機材料の界面結合剤や有機樹脂やゴムの接着改良剤、プライマー組成物等に使用されている。

【0003】

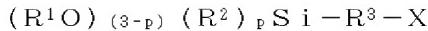
【発明が解決しようとする課題】このように、スルフィド基含有有機珪素化合物は樹脂やゴムと無機材料からなる複合材料に応用されているが、従来知られているスルフィド基含有有機珪素化合物を樹脂やゴムに添加し、無機材料とともに混練をした組成物の耐摩耗性が不十分であるという問題があった。

【0004】本発明はこのような不利、欠点を解決した新規な有機珪素化合物及びその製造方法を提供することを目的とする。

【0005】

【課題を解決するための手段及び発明の実施の形態】本発明者らは、上記目的を達成するため銳意検討を行った結果、下記一般式(2)

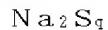
3



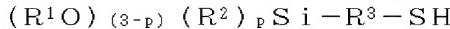
(式中、R¹及びR²はそれぞれ炭素数1～4の1価炭化水素基、R³は炭素数1～10の2価炭化水素基、Xはハロゲン原子、pは0、1又は2を示す)で表されるハ*



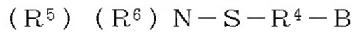
(式中、R⁴は炭素数1～10の2価炭化水素基、Xはハロゲン原子、Yは水素原子又はハロゲン原子を示す)※



(式中、qは1～4を示す)で表される無水硫化ソーダ
又は無水多硫化ソーダ及び場合により硫黄とを反応させ★10



(式中、R¹及びR²はそれぞれ炭素数1～4の1価炭化水素基、R³は炭素数1～10の2価炭化水素基、pは



(式中、R⁴は炭素数1～10の2価炭化水素基、R⁵、R⁶はそれぞれ互いに同一でも異なっていても良く、水素原子又は炭素数1～6の1価炭化水素基を示す(但し、R⁵、R⁶は同時に水素原子ではない)。又は、

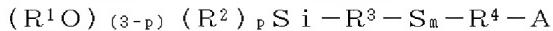
R⁵、R⁶が互いに結合して窒素原子、酸素原子又は硫黄◆



(式中、R¹及びR²は炭素数1～4の1価炭化水素基、R³は炭素数1～10の2価炭化水素基、R⁵、R⁶はそれぞれ互いに同一でも異なっていても良く、水素原子又は炭素数1～6の1価炭化水素基を示す(但し、R⁵、R⁶は同時に水素原子ではない)。又は、R⁵、R⁶は互

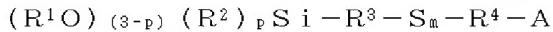


(式中、R⁴は炭素数1～10の2価炭化水素基、Zは水素原子又はSHを示す)で表されるメルカプト基含有※



(式中、R¹及びR²はそれぞれ炭素数1～4の1価炭化水素基、R³及びR⁴はそれぞれ炭素数1～10の2価炭化水素基、Aは水素原子又は式-S_m-R³-Si(O R¹)_(3-p)(R²)_p、mは2～10、pは0、1又は2を示す)で表わされる有機珪素化合物が得られることを見出しことを明に至った。

【0006】従つて、本発明は、(1)上記一般式(1)で表される有機珪素化合物、(2)上記一般式(2)及び(3)で表わされる化合物と上記一般式★



上記式中、R¹及びR²はそれぞれ炭素数1～4の1価炭化水素基、例えばメチル基、エチル基、n-プロピル基、i-ブロピル基、n-ブチル基、i-ブチル基、t-ブチル基、アリル基、メタリル基等のアルキル基、アルケニル基などを示し、R³及びR⁴はそれぞれ炭素数1～10の2価炭化水素基、例えばメチレン基、エチレン基、プロピレン基、n-ブチレン基、i-ブチレン基、ヘキシレン基、デシレン基、フェニレン基、メチルフェニルエチレン基等のアルキレン基、アリーレン基、アルケニレン基やこれらの基が結合した基などを示し、Aは水素原子又は式-S_m-R³-Si(O R¹)

…(2)

*ロゲノアルキル基含有有機珪素化合物及び下記一般式(3)

…(3)

※で表されるハロゲン基含有化合物と、下記一般式(4)

…(4)

★ること、または下記一般式(5)

…(5)

☆0、1又は2を示す)で表されるメルカプトアルキル基含有有機珪素化合物及び下記一般式(6)

…(6)

◆原子を含んでいてよい炭素数4～10の2価炭化水素基を形成する。Bは水素原子又は式-S-N(R⁵)(R⁶)を示す)で表されるスルフェンアミド基含有化合物とを反応させるか、或いは下記一般式(7)

…(7)

*いに結合して窒素原子、酸素原子又は硫黄原子を含んでいてよい炭素数4～10の2価炭化水素基を示し、pは0、1又は2を示す)で表されるスルフェンアミド基含有有機珪素化合物及び下記一般式(8)

…(8)

※化合物とを反応させることで、下記一般式(1)

…(1)

30★(4)で表わされる化合物及び場合により硫黄とを反応させるか、上記一般式(5)及び(6)で表される化合物を反応させるか、または上記一般式(7)及び(8)で表される化合物を反応させることにより、上記一般式(1)で表される有機珪素化合物の製造方法を提供する。

【0007】以下、本発明について更に詳しく説明すると、本発明の有機珪素化合物は、上述したように、下記一般式(1)で表されるものである。

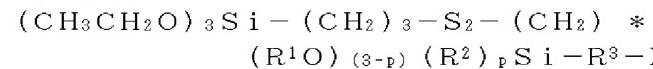
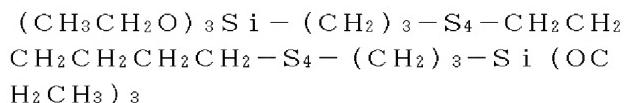
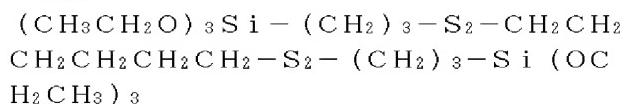
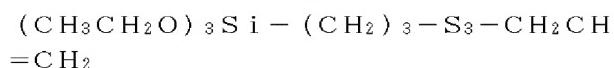
…(1)

40☆(3-p)(R₂)_pを示し、mは2～10、pは0、1又は2を示す。

【0008】このような一般式(1)で表される化合物として下記のものが代表例として挙げられる。

【0009】(CH₃O)₃Si-(CH₂)₃-S₄-CH₂CH₂CH₂CH₂CH₂CH₃
(CH₃CH₂O)₃Si-(CH₂)₃-S₂-CH₂CH₂CH₂CH₃
(CH₃O)₃Si-(CH₂)₃-S₄-(CH₂)₉CH₃
(CH₃O)₃Si-(CH₂)₃-S₂-CH₂CH=CH

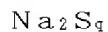
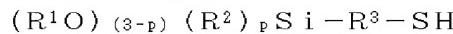
5



で表されるハロゲノアルキル基含有有機珪素化合物、下※ ※記一般式(3)



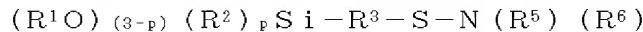
で表されるハロゲン基含有化合物、下記一般式(4)

で表される無水硫化ソーダ又は無水多硫化ソーダ、及び
場合により硫黄を反応させることで製造することができ★

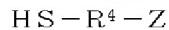
で表されるメルカプトアルキル基含有有機珪素化合物及☆



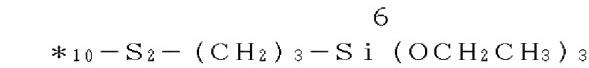
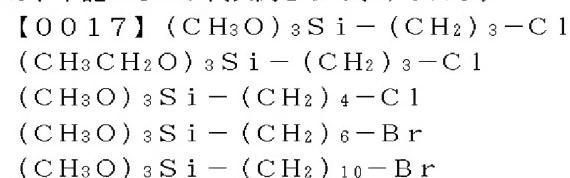
で表されるスルフェニアミド基含有化合物を反応させる◆20◆か、下記一般式(7)



で表されるスルフェニアミド基含有有機珪素化合物及び*

で表されるメルカプト基含有化合物を反応させることで
も製造することができる。【0013】上記式中のR¹、R²、R³、R⁴、Pは前述の通りである。【0014】また、R⁵、R⁶は水素原子又は炭素数1～6の1価炭化水素基、例えばメチル基、エチル基、n-ブロピル基、i-ブロピル基等のアルキル基、ビニル基、アリル基等のアルケニル基、フェニル基などを示し、R⁵、R⁶とは互いに同一でも異なっていてもよいが、R⁵、R⁶とは同時に水素原子になることはない。あるいは、R⁵、R⁶はこれらが結合する窒素原子と共に環を形成してもよく、この場合、R⁵、R⁶は互いに結合して窒素原子、酸素原子又は硫黄原子を含んでもよい炭素数4～10の2価炭化水素基、例えばアルキレン基、アリーレン基、アルケニレン基やこれらの基が結合した基などを示す。【0015】Xは塩素等のハロゲン原子、Yは水素原子又はハロゲン原子を示し、Bは水素原子又は式-S-N(R⁵)(R⁶)を示し、Zは水素原子又はSH基を示し、qは1～4を示す。

【0016】ここで、上記一般式(2)の化合物としては、下記のものが代表例として挙げられる。



【0010】なお、上述した化合物のSは不均化反応等が生じるため、分布を持っており、あくまで平均値として表記されるものである。前述した上記一般式(1)におけるmは、平均値として1～10であり、好ましくは2～4であり、より好ましくは2～3である。

【0011】このような有機珪素化合物は、上記したように、下記一般式(2)

…(2)

…(3)

…(4)

★る。

【0012】または、下記一般式(5)

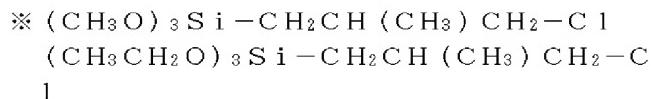
…(5)

☆び下記一般式(6)

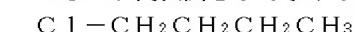
…(6)

…(7)

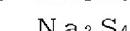
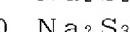
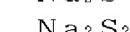
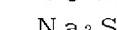
…(8)



【0018】上記一般式(3)の化合物としては、下記のものが代表例として挙げられる。

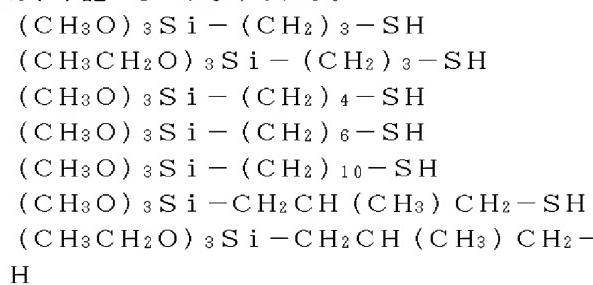
30 C1-(CH₂)₅CH₃C1-(CH₂)₉CH₃C1-CH₂CH=CH₂C1-(CH₂)₆-C1Br-(CH₂)₅CH₃C1-CH₂C(CH₃)=CH₂

【0019】上記一般式(4)の化合物としては、下記のものが挙げられる。

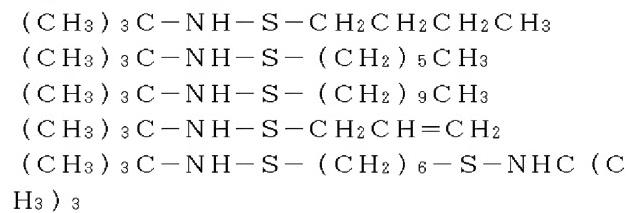
【0020】この化合物(4)の無水硫化ソーダNa₂Sの製造方法としては、含水の硫化ソーダを脱水したものや、無水状態で硫化ソーダとソディウムアルコラートとを反応させたものを使用しても良く、更に金属ナトリウム又はカリウムと硫黄とを無水状態で反応させたものを使用しても良い。また、無水多硫化ソーダは、含水の多硫化ソーダを脱水したものや、前記した無水硫化ソーダと硫黄とを無水状態で反応させたものを使用しても良く、更に金属ナトリウム又はカリウムと硫黄とを無水状

態で反応させたものを使用しても良い。

【0021】更に、上記一般式(5)の化合物としては、下記のものが挙げられる。

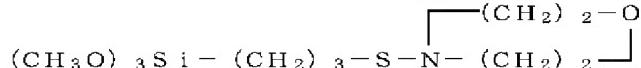


【0022】上記一般式(6)の化合物としては、下記のものが挙げられる。



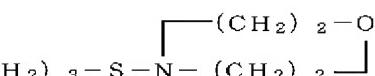
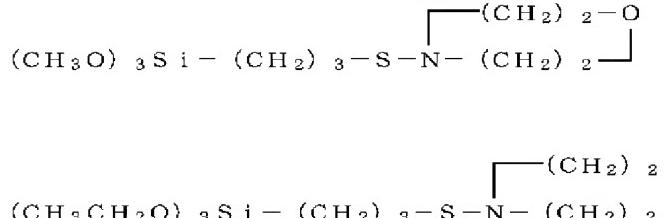
【0023】

【化1】

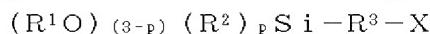
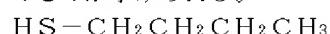


20 【0025】

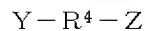
【化2】



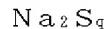
【0026】上記一般式(8)の化合物としては、下記のものが挙げられる。



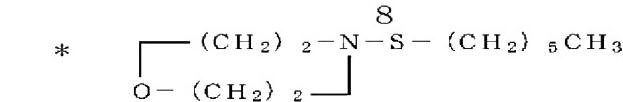
で表されるハロゲノアルキル基含有有機珪素化合物、下★ ★記一般式(3)



で表されるハロゲン基含有化合物、下記一般式(4)

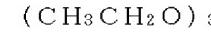
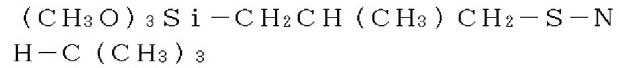
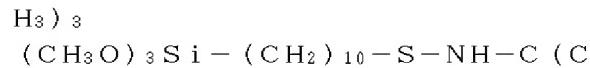
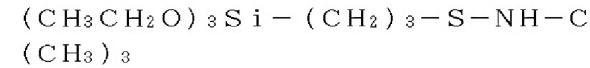
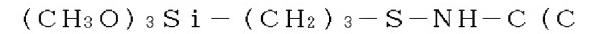


で表される無水硫化ソーダ又は無水多硫化ソーダ、及び場合により硫黄を反応させて、本発明の化合物を製造する際、溶媒の使用は任意であり、例えば、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、ベンゼン、トルエン、キシレン等の炭化水素類、メタノール、エタノール等のアルコール類、ジブチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル類、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン類、酢酸エチル等のエステル類、ジメチルホルムアミド等のアミド類等が挙げられ、特にメタノール、エタノール等のアルコール類の使用が好ましい。その際の反応温度は、0~150°C程度であり、好ましくは50~100°C程度である。反応時☆50



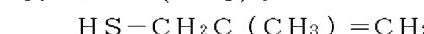
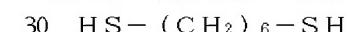
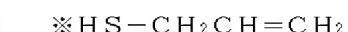
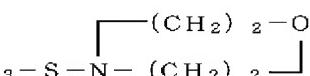
8

【0024】上記一般式(7)の化合物としては、下記のものが挙げられる。



【0025】

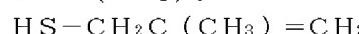
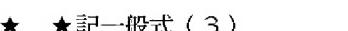
【化2】



【0027】ここで、下記一般式(2)

※

… (2)



【0027】ここで、下記一般式(2)

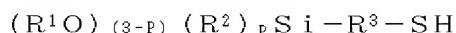
… (3)

… (4)

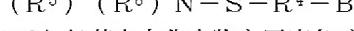
☆間は、硫化ソーダ又は多硫化ソーダが消失するまで行え
ば良いが、通常30分~20時間程度である。反応の方
法は、任意であるが、例えば、上記一般式(4)で表さ
れる化合物と場合により硫黄及び溶媒を仕込み、上記一
般式(2)及び(3)で表される化合物の混合物を滴下
しても良く、上記一般式(2)で表される化合物を滴下
後、上記一般式(3)で表される化合物を滴下しても良
い。更に、上記一般式(2)及び(3)で表される化合
物及び場合により硫黄及び溶媒を仕込み、上記一般式
(4)で表される化合物を徐々に導入しても良い。

【0028】この場合、各成分の反応モル比は以下の通
りであることが好ましい。即ち、上記一般式(2)で表

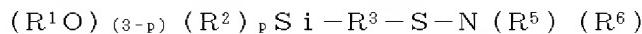
されるハロゲノアルキル基含有有機珪素化合物と上記一般式(3)で表されるハロゲン基含有化合物とのモル比は、上記一般式(2)の化合物／上記一般式(3)の化合物=1／0.9～1.1とすれば良く、上記一般式(2)で表されるハロゲノアルキル基含有有機珪素化合物及び上記一般式(3)で表されるハロゲン基含有化合物のハロゲン基と上記一般式(4)で表される無水硫化*



で表されるメルカプトアルキル基含有有機珪素化合物及※

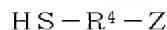


で表されるスルフェンアミド基含有化合物を反応させて本発明の化合物を製造する際の溶媒の使用は任意であり、例えば、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、ベンゼン、トルエン、キシレン等の炭化水素類、メタノール、エタノール等のアルコール類、ジブチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル類、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン類、酢酸エチル等のエステル類、ジメチルホルムアミド等のアミド類等が挙げられる。その際の反応温度は、0～150°C程度であり、好ましくは50～100★20



…(5)

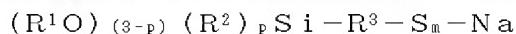
で表されるスルフェンアミド基含有有機珪素化合物及び☆



☆下記一般式(8)

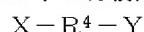
…(6)

で表されるメルカプト基含有化合物を反応させて本発明の化合物を製造する際の溶媒の使用は任意であり、例えば、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、ベンゼン、トルエン、キシレン等の炭化水素類、メタノール、エタノール等のアルコール類、ジブチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル類、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン類、酢酸エチル等のエステル類、ジメチルホルムアミド等のアミド類等が挙げられる。その際の反応温度は、0～150°C程度であり、好ましくは50～100°C程度である◆



…(9)

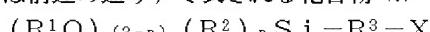
(式中、R¹、R²、R³、mは前述の通り)で表される*



*化合物と下記一般式(10)

…(10)

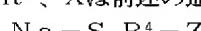
(式中、R⁴、X、Yは前述の通り)で表される化合物※



※とから、或いは、下記一般式(11)

…(11)

(式中、R¹、R²、R³、Xは前述の通り)で表される★



★化合物と下記一般式(12)

…(12)

(式中、Zは水素原子又は-S_m-Naを示し、R⁴、m、nは前述の通り)で表される化合物とからも合成することは可能である。

【0032】但し、上述した反応では、本発明の化合物は高純度で合成可能であるが、この合成方法では、原料コストが高く、あまり好ましくない。

【0033】本発明の有機珪素化合物は、熱硬化性樹脂、熱可塑性樹脂、ゴム等の有機材料とシリカ、水酸化☆



…(13)

*ソーダ又は無水多硫化ソーダのナトリウムとのモル比は、上記一般式(2)の化合物+上記一般式(3)の化合物中のハロゲン原子／上記一般式(4)の化合物中のナトリウム=1／0.9～1.1とすれば良い。硫黄の添加量は任意であるが、少なくとも(m-q)モル添加すればよい。

【0029】次に、下記一般式(5)

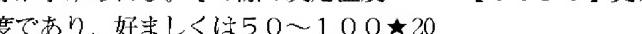
…(5)

※び下記一般式(6)

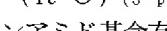
…(6)

★℃程度である。反応時間は、上記一般式(5)又は(6)で表される化合物のいずれかが消失するまで行えば良く、通常30分～20時間程度である。反応の方法は、任意であり、例えば、上記一般式(5)及び(6)で表される化合物と場合により溶媒を仕込み、昇温し反応すれば良い。上記一般式(5)及び(6)との反応モル比は、上記一般式(5)の化合物／上記一般式(6)の化合物=1／0.9～1.1とすればよい。

【0030】更に、下記一般式(7)



…(7)

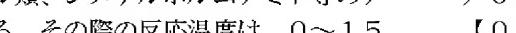


…(8)

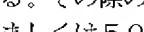
◆る。反応時間は、上記一般式(7)又は(8)で表される化合物のいずれかが消失するまで行えば良く、通常30分～20時間程度である。反応の方法は、任意であり、例えば、上記一般式(7)及び(8)で表される化合物と場合により溶媒を仕込み、昇温し反応すれば良い。上記一般式(7)及び(8)の反応モル比は、上記一般式(7)の化合物／上記一般式(8)の化合物=1

30 /0.9～1.1とすればよい。

【0031】なお、本発明の化合物は、下記一般式(9)

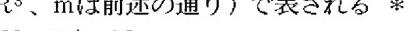


…(9)



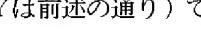
…(10)

(式中、R⁴、X、Yは前述の通り)で表される化合物※



…(11)

(式中、R¹、R²、R³、Xは前述の通り)で表される★



…(12)

(式中、Zは水素原子又は-S_m-Naを示し、R⁴、m、nは前述の通り)で表される化合物とからも合成することは可能である。

【0032】但し、上述した反応では、本発明の化合物は高純度で合成可能であるが、この合成方法では、原料コストが高く、あまり好ましくない。

【0033】本発明の有機珪素化合物は、熱硬化性樹脂、熱可塑性樹脂、ゴム等の有機材料とシリカ、水酸化☆

☆アルミ、タルク等の無機材料との界面結合剤、接着改良剤、表面処理剤等として好適に用いられる。この場合、本発明の有機珪素化合物を樹脂やゴムに添加し、無機材料とともに、混練した組成物の耐摩耗性が良好なものである。

【0034】なお、本発明の製造方法においては、下記一般式(13)

11

(式中、R¹、R²、R³、mは前述の通り)及び、下記*

$$D - (R^4 - S_m - R^4 - E)_s -$$

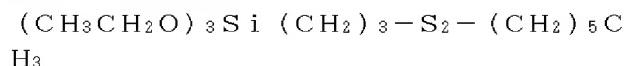
(式中、Dは水素原子又はEとの結合、Eは水素原子又は-S_n-を示し、sは1以上の整数を示し、R⁴、m、nは前述の通り)で表される化合物を不純物として含有するものと推定される。

【0035】しかしながら、この不純物を組成中に含有しても、本化合物をゴムや有機樹脂に添加或いは無機フィラーに表面処理して使用する場合には何ら支障はない。

【0036】

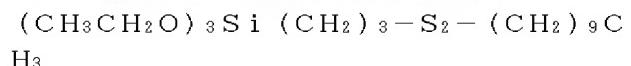
【実施例】以下、実施例により本発明を更に具体的に説明するが、本発明は下記の実施例に限定されるものではない。

【0037】[実施例1]窒素ガス導入管、温度計、ジムロート型コンデンサー及び滴下漏斗を備えた1リットルのセパラブルフラスコに、エタノール250g、無水硫化ソーダ78g(1.0mol)、硫黄32g(1.0mol)を仕込み、75°Cにて3-クロロプロピルトリエトキシシラン240.5g(1.0mol)及びn-ヘキシリクロライド120.5g(1.0mol)の混合物を滴下した。この滴下には50分を要した。滴下終了後、8時間熟成を続け、その後、溶液を沪過した。沪液をロータリーエバポレーターにて減圧濃縮したところ、褐色透明の液体271.1gが得られた。このものの粘度は25°Cにて5.6mm²/s、屈折率は25°Cにて1.4673であった。このものの赤外線吸収スペクトル分析及び1H核磁気共鳴スペクトル分析を行った結果、下記平均組成式



で表されるスルフィド基含有アルコキシランであることが確認された。

【0038】[実施例2]実施例1で使用したn-ヘキシリクロライドのかわりに、n-デシルクロライド176.5g(1.0mol)を用いた他は同様に反応を行ったところ、褐色透明の液体322.7gを得た。このものの赤外線吸収スペクトル分析及び1H核磁気共鳴スペクトル分析を行った結果、下記平均組成式



で表されるスルフィド基含有アルコキシランであることが確認された。

【0039】[実施例3]実施例1で使用した3-クロロプロピルトリエトキシシランのかわりに3-クロロプロピルトリメトキシシラン198.5g(1.0mol)を用い、エタノールのかわりにメタノールを用いた他は同様に反応を行ったところ、褐色透明の液体230.5gが得られた。このものの赤外線吸収スペクトル分析及び1H核磁気共鳴スペクトル分析を行った結果、下記平※50

*一般式(14)

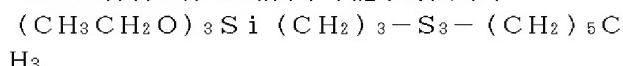
12

…(14)

※均組成式

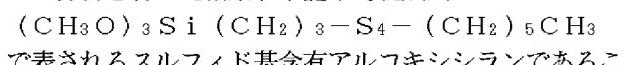
$(CH_3O)_3Si(CH_2)_3-S_2-(CH_2)_5CH_3$ で表されるスルフィド基含有アルコキシランであることが確認された。

【0040】[実施例4]実施例1で使用した硫黄の使用量を64g(2.0mol)とした他は同様に反応を行ったところ、褐色透明の液体272.1gを得た。このものの赤外線吸収スペクトル分析及び1H核磁気共鳴スペクトル分析を行った結果、下記平均組成式



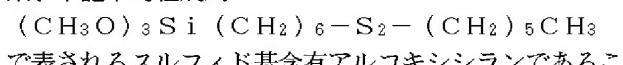
で表されるスルフィド基含有アルコキシランであることが確認された。

【0041】[実施例5]実施例1で使用した無水硫化ソーダと硫黄のかわりに無水4硫化ソーダを174g(1.0mol)とした他は同様に反応を行ったところ、褐色透明の液体257.8gが得られた。このものの赤外線吸収スペクトル分析及び1H核磁気共鳴スペクトル分析を行った結果、下記平均組成式



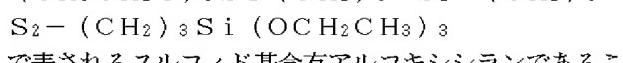
で表されるスルフィド基含有アルコキシランであることが確認された。

【0042】[実施例6]実施例1で使用した3-クロロプロピルトリエトキシシランのかわりに6-ブロモヘキシリトリメトキシシランを285g(1.0mol)とした他は同様に反応を行ったところ、褐色透明の液体283.1gが得られた。このものの赤外線吸収スペクトル分析及び1H核磁気共鳴スペクトル分析を行った結果、下記平均組成式



で表されるスルフィド基含有アルコキシランであることが確認された。

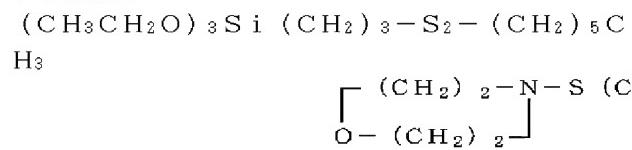
【0043】[実施例7]実施例1で使用したn-ヘキシリクロライドのかわりにジクロロヘキサンを77.5g(0.5mol)を用いた他は同様に反応を行ったところ、褐色透明の液体292.4gが得られた。このものの赤外線吸収スペクトル分析及び1H核磁気共鳴スペクトル分析を行った結果、下記平均組成式



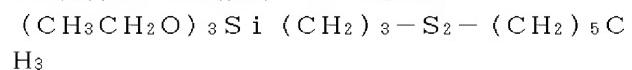
で表されるスルフィド基含有アルコキシランであることが確認された。

【0044】[実施例8]窒素ガス導入管、温度計、ジムロート型コンデンサー及び滴下漏斗を備えた1リットルのセパラブルフラスコに、3-メルカプトプロピルトリエトキシシラン238.0g(1.0mol)と式 $(CH_3)_3C-NH-S(CH_2)_5CH_3$ で表されるスルフェンアミド化合物203.0g(1.0mol)とを仕

込み、95°Cにて、5時間熟成を続けた。反応液をロータリーエバポレーターにて減圧濃縮し、副生した七-ブチルアミンを除去したところ、褐色透明の液体323.6gが得られた。このものの赤外線吸収スペクトル分析及び¹H核磁気共鳴スペクトル分析を行った結果、下記平均組成式



【0047】で表されるスルフェンアミド化合物323.0g(1.0mol)とを仕込み、95°Cにて、10時間熟成を続けた。反応液をロータリーエバポレーターにて減圧濃縮し、副生したモルホリンを除去したところ、褐色透明の液体327.9gが得られた。このものの赤外線吸収スペクトル分析及び¹H核磁気共鳴スペクトル分析を行った結果、下記平均組成式



で表されるスルフィド基含有アルコキシランであることが確認された。

【0048】[実施例10]実施例9で使用したn-ヘキシリルメルカプタンのかわりにアリルメルカプタン74.0g(1.0mol)とし、トルエン200gを溶媒と※

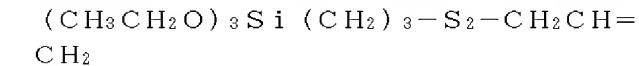
*で表されるスルフィド基含有アルコキシランであることが確認された。

【0045】[実施例9]窒素ガス導入管、温度計、ジムロート型コンデンサー及び滴下漏斗を備えた1リットルのセパラブルフラスコに、n-ヘキシリルメルカプタン118.0g(1.0mol)と下記式

【0046】

【化3】

※して使用し、反応温度を50°Cとした他は同様に反応を行ったところ、褐色透明の液体275.9gが得られた。このものの赤外線吸収スペクトル分析及び、¹H核磁気共鳴スペクトル分析を行った結果、下記平均組成式



で表されるスルフィド基含有アルコキシランであることが確認された。

【発明の効果】本発明の有機珪素化合物は、無機有機複合材料用配合剤又はフィラーの表面処理剤として有用であり、また本発明の製造方法によれば、かかる有機珪素化合物を確実に製造し得る。

フロントページの続き

(72)発明者 山谷 正明

群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10
信越化学工業株式会社シリコーン電子材料
技術研究所内

F ターム(参考) 4H049 VN01 VP01 VP02 VQ49 VQ52
VQ64 VR21 VR43 VS12 VS13
VS48 VT03 VT26 VU16
4J002 AA011 AA021 AC001 DE146
DJ016 DJ046 EX087 FB096
FD016 FD207

PAT- NO: JP2002308887A
DOCUMENT- IDENTIFIER: JP 2002308887 A
TITLE: ORGANOSILICON COMPOUND AND ITS
PREPARATION PROCESS
PUBN- DATE: October 23, 2002

INVENTOR- INFORMATION:

NAME	COUNTRY
YANAGISAWA, HIDEYOSHI	N/ A
YAMATANI, MASAAKI	N/ A

ASSIGNEE- INFORMATION:

NAME	COUNTRY
SHIN ETSU CHEM CO LTD	N/ A

APPL- NO: JP2001107982

APPL- DATE: April 6, 2001

INT- CL (IPC): C07F007/18 , C08K005/548

ABSTRACT:

PROBLEM TO BE SOLVED: To enable a secure preparation of an organosilicon compound useful as a compounding additive for inorganic- organic composite materials or a finishing agent for filers.

SOLUTION: The organosilicon compound is represented by formula (1): $(R_1O)(3-p)(R_2)pSi-R_3-Sm-R_4-A$ [wherein R₁ and R₂ are each a 1- 4C univalent hydrocarbon group; R₃ and R₄ are each a 1- 10C bivalent hydrocarbon group; A is a hydrogen atom or -Sm- R₃- Si(OR₁)(3-p)(R₂)p; m is 2- 10; and p is 0, 1 or 2].

COPYRIGHT: (C)2002,JPO